



VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

(Kapitel II des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts B03/0721PC	WEITERES VORGEHEN siehe Formblatt PCT/PEA/416	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP2004/010681	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 23.09.2004	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 25.09.2003
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07C45/27, C07C49/607, C07C45/62, C07C49/413		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT		
<p>1. Bei diesem Bericht handelt es sich um den internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, der von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde nach Artikel 35 erstellt wurde und dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt wird.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 7 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p>3. Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; diese umfassen</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> (an den Anmelder und das Internationale Büro gesandt) insgesamt 3 Blätter; dabei handelt es sich um</p> <p><input type="checkbox"/> Blätter mit der Beschreibung, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit Berichtigungen, denen die Behörde zugestimmt hat (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsvorschriften).</p> <p><input type="checkbox"/> Blätter, die frühere Blätter ersetzen, die aber aus den in Feld Nr. 1, Punkt 4 und im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde eine Änderung enthalten, die über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht.</p> <p>b. <input type="checkbox"/> (nur an das Internationale Büro gesandt) insgesamt (bitte Art und Anzahl der/des elektronischen Datenträger(s) angeben), der/die ein Sequenzprotokoll und/oder die dazugehörigen Tabellen enthält/enhalten, nur in computerlesbarer Form, wie im Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll angegeben (siehe Abschnitt 802 der Verwaltungsvorschriften).</p>		
<p>4. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. I Grundlage des Bescheids</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. II Priorität</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. III Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. IV Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</p>		
Datum der Einreichung des Antrags 04.07.2005	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 22.12.2005	
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Lorenzo Varela, M.J. Tel. +49 89 2399-8239 	

Feld Nr. I Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Sprache** beruht der Bericht auf der internationalen Anmeldung in der Sprache, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.
- ☐ Der Bericht beruht auf einer Übersetzung aus der Originalsprache in die folgende Sprache, bei der es sich um die Sprache der Übersetzung handelt, die für folgenden Zweck eingereicht worden ist:
- ☐ internationale Recherche (nach Regeln 12.3 und 23.1 b))
 - ☐ Veröffentlichung der internationalen Anmeldung (nach Regel 12.4)
 - ☐ internationale vorläufige Prüfung (nach Regeln 55.2 und/oder 55.3)
2. Hinsichtlich der **Bestandteile*** der internationalen Anmeldung beruht der Bericht auf *(Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt):*

Beschreibung, Seiten

1-28 in der ursprünglich eingereichten Fassung

Ansprüche, Nr.

1-19 eingegangen am 04.07.2005 mit Schreiben vom 04.07.2005

☐ einem Sequenzprotokoll und/oder etwaigen dazugehörigen Tabellen - siehe Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll

3. ☐ Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:
- ☐ Beschreibung: Seite
 - ☐ Ansprüche: Nr.
 - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
 - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
 - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):
4. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der diesem Bericht beigelegten und nachstehend aufgelisteten Änderungen erstellt worden, da diese aus den im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2 c)).
- ☐ Beschreibung: Seite
 - ☐ Ansprüche: Nr.
 - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
 - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
 - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):

* Wenn Punkt 4 zutrifft, können einige oder alle dieser Blätter mit der Bemerkung "ersetzt" versehen werden.

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT
ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT**

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2004/010681

Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35 (2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung
- | | |
|--------------------------------|----------------------|
| Neuheit (N) | Ja: Ansprüche 1-19 |
| | Nein: Ansprüche |
| Erfinderische Tätigkeit (IS) | Ja: Ansprüche |
| | Nein: Ansprüche 1-19 |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-19 |
| | Nein: Ansprüche: |

2. Unterlagen und Erklärungen (Regel 70.7):

siehe Beiblatt

Zu Punkt V

Begründete Feststellung hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

- D1: PATENT ABSTRACTS OF JAPAN Bd. 2003, Nr. 12, 5. Dezember 2003 (2003-12-05) & JP 2004 059434 A (UBE IND LTD), 26. Februar 2004 (2004-02-26)
- D2: GB 876 531 A (STUDIENGESELLSCHAFT KOHLE M.B.H) 6. September 1961 (1961-09-06)
- D3: EP-A-1 035 119 (UBE INDUSTRIES, LTD) 13. September 2000 (2000-09-13)
- D4: EP-A-1 170 291 (UBE INDUSTRIES, LTD; EMS-CHEMIE AG) 9. Januar 2002 (2002-01-09)
- D5: ZAKHARKIN L I ET AL: "ISOMERIZATION OF TRANS-1,2-EPOXY-CIS,TRANS-5,9-CYCLODODECAD IENE, TRANS-1,2-EPOXY-TRANS,TRANS-5,9-CYCLODODEC ADIENE, AND TRANS-EPOXYCYCLODODECANE TO THE CORRESPONDING KETONES BY THE ACTION OF LITHIUM AND MAGNESIUM IODIDES AND BROMIDES" JOURNAL OF ORGANIC CHEMISTRY OF THE USSR. (ZHURNAL ORGANICHESKOI KHIMII), CONSULTANTS BUREAU. NEW YORK, US, Bd. 26, Nr. 7, 1990, Seiten 1291-1294, XP000999526
- D6: PATENT ABSTRACTS OF JAPAN Bd. 2002, Nr. 02, 2. April 2002 (2002-04-02) & JP 2001 302570 A (UBE IND LTD), 31. Oktober 2001 (2001-10-31)
- D7: US-A-2 636 898 (BUCKLEY GERARD DUNSTAN) 28. April 1953 (1953-04-28)
- D8: GB 649 680 A (GERARD DUNSTAN BUCKLEY; ALAN PICKLES DRIVER; FRANCIS STEPHEN BRIDSON J) 31. Januar 1951 (1951-01-31)

1. Die vorliegende Patentanmeldung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Cyclododecadienon, wobei Cyclododecatrien mit Distickstoffmonoxid unter Erhalt von Cyclododecadienon umgesetzt wird. Die Patentanmeldung betrifft auch ein Verfahren zur Herstellung von Cyclododecanon, umfassend die Schritte (I) Umsetzung von Cyclododecatrien mit Distickstoffmonoxid unter Erhalt von Cyclododecadienon und (II) Hydrierung des gemäß (I) erhaltenen Cyclododecadienons unter Erhalt von Cyclododecanon.
2. D1 offenbart die Herstellung von Cyclododecanon aus Cyclododecatrien, wobei in einem

ersten Schritt Cyclododecatrien zu Epoxycyclododecadien epoxidiert wird und in einem zweiten Schritt das Epoxid zu Cyclododecanon hydriert wird. P-Dokument.

3. D2 offenbart die Herstellung von Cyclododecanon/Cyclododecadienon aus Cyclododecatrien, wobei in einem ersten Schritt Cyclododecatrien zu Epoxycyclododecadien epoxidiert wird und in einem zweiten Schritt das Epoxid katalytisch zu Cyclododecanon/Cyclododecadienon umgelagert wird.
4. D3 und D4 offenbaren die Herstellung von Epoxycyclododecadien aus Cyclododecatrien.
5. D5 offenbart die Umsetzung von Epoxycyclododecadien zu Cyclododecadienon und die Hydrierung von Cyclododecadienon zu Cyclododecanon.
6. D6 offenbart die Hydrierung von Epoxycyclododecadien zu Cyclododecanon.
7. D7 und D8 offenbaren die Oxidation einer cyclischen olefinischen Verbindung von bis zu 8 C-Atomen zu einem Keton mittels Distockstoffmonoxid.

Neuheit

9. Der Gegenstand der Ansprüche 1-19 ist im Sinne von Artikel 33(2) PCT neu. Ein Verfahren zur Herstellung von Cyclododecadienon, wobei Cyclododecatrien mit Distockstoffmonoxid unter Erhalt von Cyclododecadienon umgesetzt wird, wurde im Stand der Technik nicht offenbart (siehe Absätze 3-7).

Erfinderische Tätigkeit

10. Der Gegenstand der Ansprüche 1-10 beruht auf keiner erfinderischen Tätigkeit im Sinne von Artikel 33(3) PCT.
 - a. Verfahren zur Herstellung von Cyclododecadienon aus Cyclododecatrien, wobei in einem ersten Schritt Cyclododecatrien zu Epoxycyclododecadien epoxidiert wird und in einem zweiten Schritt das Epoxid katalytisch zu Cyclododecadienon umgelagert wird (siehe D2), sind aus dem Stand der Technik bekannt.

- b. Als technisches Problem wird die Bereitstellung eines besseren Verfahrens zur Herstellung von Cyclododecadienon angesehen.
- c. Angesichts der Anmeldung kann Cyclododecatrien durch eine einstufige Umsetzung mit Distickstoffmonoxid zu Cyclododecadienon oxidiert werden. In der Anmeldung gibt es allerdings nur dafür ein **Beweis -Beispiele-**, dass das beschriebene Verfahren zu einem guten Ergebnis führt, wenn das Verfahren mit **1,5,9-Cyclododecatrien** und in einem bestimmten Temperaturbereich und Druckbereich durchgeführt wird. Da diese technischen Merkmale nicht im Anspruch 1 stehen, beruht der Gegenstand der Ansprüche 1-10 auf keiner erfinderischen Tätigkeit.
11. Der oben unter Punkt 10 erhobene Einwand wegen mangelnder erfinderischer Tätigkeit gilt analog für den Gegenstand der Ansprüche 11-19.

Zu beachtende Punkte

12. Die Ansprüche 1 und 11 wurden zwar als getrennte, unabhängige Ansprüche abgefaßt, sie scheinen sich aber tatsächlich auf ein und denselben Gegenstand zu beziehen und unterscheiden sich voneinander offensichtlich nur durch die Merkmale, dass im Anspruch 11 Cyclododecadienon bei einem zweiten Schritt zu Cyclododecanon hydriert wird. Deswegen hätte Anspruch 11 abhängig von Anspruch 1 formuliert werden sollen. Aus diesem Grund sind die Ansprüche nicht knapp gefaßt und erfüllen nicht die Erfordernisse des Artikels 6 PCT.

Der Anmelder wird darauf hingewiesen, dass der Gegenstand von Anspruch 11 schon im Gegenstand von Anspruch 9 enthalten ist.

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER
BERICHT ZUR PATENTIERBARKEIT
(BEIBLATT)**

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2004/010681

BASF Aktiengesellschaft
PCT/EP2004/010681

4. Juli 2005
B03/0721PC IB/AT/SKO

Patentansprüche 1 bis 19

5

1. Verfahren zur Herstellung eines Ketons, umfassend die Umsetzung von Cyclododecatrien mit Distickstoffmonoxid unter Erhalt von Cyclododecadienon.

10

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass als Distickstoffmonoxidquelle mindestens ein Distickstoffmonoxid enthaltendes Abgas mindestens eines industriellen Verfahrens dient.

15

3. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, dass die Distickstoffmonoxidquelle das Abgas einer Adipinsäureanlage und/oder einer Dodecandisäureanlage und/oder einer Hydroxylaminanlage und/oder einer mit dem Abgas einer Adipinsäureanlage und/oder einer Dodecandisäureanlage und/oder einer Hydroxylaminanlage betriebenen Salpetersäureanlage ist.

20

4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass Cyclododecatrien mit einem Gasgemisch, enthaltend 20 bis 99,9 Gew.-% Distickstoffmonoxid, bezogen auf das Gesamtgewicht des Gasgemisches, umgesetzt wird.

25

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass Distickstoffmonoxid oder das Gasgemisch enthaltend Distickstoffmonoxid in flüssiger Form eingesetzt wird.

30

6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass die Umsetzung bei einer Temperatur im Bereich von 140 bis 350 °C und einem Druck im Bereich von 1 bis 1000 bar durchgeführt wird.

- 2 -

- 5
7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass die Umsetzung bei einer Selektivität, bezogen auf Cyclododecadienon, von mindestens 90 % einen Umsatz von Cyclododecatrien im Bereich von 1 bis 80 % aufweist.
8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass als Cyclododecatrien cis,trans,trans-1,5,9-Cyclododecatrien eingesetzt und gemäß (ii) mit Distickstoffmonoxid zu Cyclododeca-4,8-dienon umgesetzt wird.
- 10 9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass das aus der Umsetzung von Cyclododecatrien mit Distickstoffmonoxid erhaltene Cyclododecadienon unter Erhalt von Cyclododecanon hydriert wird.
- 15 10. Verfahren nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass die Hydrierung in Anwesenheit eines Hydrierkatalysators bei einer Temperatur im Bereich von 0 bis 250 °C und einem Druck im Bereich von 1 bis 325 bar durchgeführt wird.
11. Verfahren zur Herstellung von Cyclododecanon, umfassend die Schritte (I) und (II)
- 20 (I) Umsetzung von Cyclododecatrien mit Distickstoffmonoxid unter Erhalt von Cyclododecadienon;
- (II) Hydrierung des gemäß (I) erhaltenen Cyclododecadienons unter Erhalt von Cyclododecanon.
- 25 12. Verfahren nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass als Distickstoffmonoxidquelle mindestens ein Distickstoffmonoxid enthaltendes Abgas mindestens eines industriellen Verfahrens dient.
- 30 13. Verfahren nach Anspruch 12, dadurch gekennzeichnet, dass die Distickstoffmonoxidquelle das Abgas einer Adipinsäureanlage und/oder einer Dodecandisäureanlage und/oder einer Hydroxylaminanlage und/oder einer mit dem

Abgas einer Adipinsäureanlage und/oder einer Dodecandisäureanlage und/oder einer Hydroxylaminanlage betriebenen Salpetersäureanlage ist.

- 5 14. Verfahren nach einem der Ansprüche 11 bis 13, dadurch gekennzeichnet, dass Cyclododecatrien mit einem Gasgemisch, enthaltend 20 bis 99,9 Gew.-% Distickstoffmonoxid, bezogen auf das Gesamtgewicht des Gasgemisches, umgesetzt wird.
- 10 15. Verfahren nach einem der Ansprüche 11 bis 14, dadurch gekennzeichnet, dass Distickstoffmonoxid oder das Gasgemisch enthaltend Distickstoffmonoxid in flüssiger Form eingesetzt wird.
- 15 16. Verfahren nach einem der Ansprüche 11 bis 15, dadurch gekennzeichnet, dass die Umsetzung gemäß (I) bei einer Temperatur im Bereich von 140 bis 350 °C und einem Druck im Bereich von 1 bis 1000 bar durchgeführt wird.
- 20 17. Verfahren nach einem der Ansprüche 11 bis 16, dadurch gekennzeichnet, dass die Umsetzung gemäß (I) bei einer Selektivität, bezogen auf Cyclododecadienon, von mindestens 90 % einen Umsatz von Cyclododecatrien im Bereich von 1 bis 80 % aufweist.
- 25 18. Verfahren nach einem der Ansprüche 11 bis 17, dadurch gekennzeichnet, dass als Cyclododecatrien cis,trans,trans-1,5,9-Cyclododecatrien eingesetzt und gemäß (I) mit Distickstoffmonoxid zu Cyclododeca-4,8-dienon umgesetzt wird.
- 30 19. Verfahren nach einem der Ansprüche 11 bis 18, dadurch gekennzeichnet, dass die Hydrierung gemäß (II) in Anwesenheit eines heterogenen Hydrierkatalysators bei einer Temperatur im Bereich von 0 bis 250 °C und einem Druck im Bereich von 1 bis 325 bar durchgeführt wird.

Claims as enclosed to "TPRP"

We claim:

- 5 1. A process for preparing a ketone comprising the reaction of cyclododecatriene with dinitrogen monoxide to obtain cyclododecadienone.
2. A process as claimed in claim 1, wherein the dinitrogen monoxide source is at least one dinitrogen monoxide-containing offgas of at least one industrial process.
- 10 3. A process as claimed in claim 2, wherein the dinitrogen monoxide source is the offgas of an adipic acid plant and/or of a dodecanedioic acid plant and/or of a hydroxylamine plant and/or of a nitric acid plant operated with the offgas of an adipic acid plant and/or of a dodecanedioic acid plant and/or of a hydroxylamine plant.
- 15 4. A process as claimed in any of claims 1 to 3, wherein cyclododecatriene is reacted with a gas mixture containing from 20 to 99.9% by weight of dinitrogen monoxide, based on the total weight of the gas mixture.
- 20 5. A process as claimed in any of claims 1 to 4, wherein the dinitrogen monoxide or the gas mixture containing dinitrogen monoxide is used in liquid form.
6. A process as claimed in any of claims 1 to 5, wherein the reaction is carried out at a temperature in the range from 140 to 350°C and a pressure in the range from 1 to 1000
- 25 bar.
7. A process as claimed in any of claims 1 to 6, wherein the reaction has a conversion of cyclododecatriene in the range from 1 to 80% at a selectivity based on cyclododecadienone of at least 90%.
- 30 8. A process as claimed in any of claims 1 to 7, wherein the cyclododecatriene is cis,trans,trans-1,5,9-cyclododecatriene and is reacted in (ii) with dinitrogen monoxide to give cyclododeca-4,8-dienone.
- 35 9. A process as claimed in any of claims 1 to 8, wherein the cyclododecadienone obtained from the reaction of cyclododecatriene with dinitrogen monoxide is hydrogenated to obtain cyclododecanone.

10. A process as claimed in claim 9, wherein the hydrogenation is carried out in the presence of a hydrogenation catalyst at a temperature in the range from 0 to 250°C and a pressure in the range from 1 to 325 bar.
- 5 11. A process for preparing cyclododecanone, comprising the steps (I) and (II)
- (I) reacting cyclododecatriene with dinitrogen monoxide to obtain cyclododecadienone;
- 10 (II) hydrogenating the cyclododecadienone obtained in (I) to obtain cyclododecanone.
12. A process as claimed in claim 11, wherein the dinitrogen monoxide source used is at least one offgas comprising dinitrogen monoxide from at least one industrial process.
- 15 13. A process as claimed in claim 12, wherein the dinitrogen monoxide source is the offgas of an adipic acid plant and/or of a dodecanedioic acid plant and/or of a hydroxylamine plant and/or of a nitric acid plant operated with the offgas of an adipic acid plant and/or of a dodecanedioic acid plant and/or of a hydroxylamine plant.
- 20 14. A process as claimed in any of claims 11 to 13, wherein cyclododecatriene is reacted with a gas mixture containing from 20 to 99.9% by weight of dinitrogen monoxide, based on the total weight of the gas mixture.
- 25 15. A process as claimed in any of claims 11 to 14, wherein the dinitrogen monoxide or the gas mixture containing dinitrogen monoxide is used in liquid form.
- 30 16. A process as claimed in any of claims 11 to 15, wherein the reaction in (I) is carried out at a temperature in the range from 140 to 350°C and a pressure in the range from 1 to 1000 bar.
- 35 17. A process as claimed in any of claims 11 to 16, wherein the reaction in (I) has a conversion of cyclododecatriene in the range from 1 to 80% at a selectivity based on cyclododecadienone of at least 90%.
18. A process as claimed in any of claims 11 to 17, wherein the cyclododecatriene used is cis,trans,trans-1,5,9-cyclododecatriene and is reacted in (I) with dinitrogen monoxide to give cyclododeca-4,8-dienone.

19. A process as claimed in any of claims 11 to 18, wherein the hydrogenation in (II) is carried out in the presence of a heterogeneous hydrogenation catalyst at a temperature in the range from 0 to 250°C and a pressure in the range from 1 to 325 bar.